

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat

(c) 2004 EPO. All rts. reserv.

17925316

Basic Patent (No,Kind,Date): JP 2002164164 A2 20020607 <No. of Patents: 002>

ORGANIC EL ELEMENT (English)

Patent Assignee: DENSO CORP

Author (Inventor): SUZUKI HARUMI; YAMAMOTO ATSUSHI; TERA AKINOSUKE;
TAKENAKA HIROSHI

IPC: *H05B-033/04; H05B-033/12; H05B-033/14; H05B-033/22

Language of Document: Japanese

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date	
JP 2002164164	A2	20020607	JP 2000359836	A	20001127	(BASIC)
JP 3405335	B2	20030512	JP 2000359836	A	20001127	

Priority Data (No,Kind,Date):

JP 2000359836 A 20001127

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2004 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

07295685 **Image available**

ORGANIC EL ELEMENT

PUB. NO.: **2002-164164** [JP 2002164164 A]

PUBLISHED: June 07, 2002 (20020607)

INVENTOR(s): SUZUKI HARUMI

YAMAMOTO ATSUSHI

TERA AKINOSUKE

TAKENAKA HIROSHI

APPLICANT(s): DENSO CORP

APPL. NO.: 2000-359836 [JP 2000359836]

FILED: November 27, 2000 (20001127)

INTL CLASS: H05B-033/04; H05B-033/12; H05B-033/14; H05B-033/22

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL element having a protection membrane that can be formed in a short time and is prevented from making a pin hole.

SOLUTION: A laminate body laminated in the order of a positive electrode 20, an organic layer 30 containing a light emitting layer 32 and a negative electrode, and a lamellar body 20-50 made of partition walls 50 that separate the negative electrodes 40, are formed on a substrate 10. A protection membrane 60 that protects by covering the lamellar body 20-50 is formed on the substrate 10. And this protection membrane 60 has a thickness which is same as or more than the thickness of the partition wall 50 that is the maximum thickness of the lamellar body, and is made a two ply structure laminated in the order of a first membrane 61 and second membrane 62 from the substrate 10 side. The second membrane 62 is thinner than the first membrane 61 and is made to have a high water vapor-poof function.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-164164
(P2002-164164A)

(43)公開日 平成14年6月7日(2002.6.7)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-コード(参考)
H 0 5 B 33/04		H 0 5 B 33/04	3 K 0 0 7
33/12		33/12	B
33/14		33/14	A
33/22		33/22	Z

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願2000-359836(P2000-359836)

(22)出願日 平成12年11月27日(2000.11.27)

(71)出願人 000004260

株式会社デンソー

愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地

(72)発明者 鈴木 晴規

愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会
社デンソー内

(72)発明者 山本 敦司

愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会
社デンソー内

(74)代理人 100100022

弁理士 伊藤 洋二 (外2名)

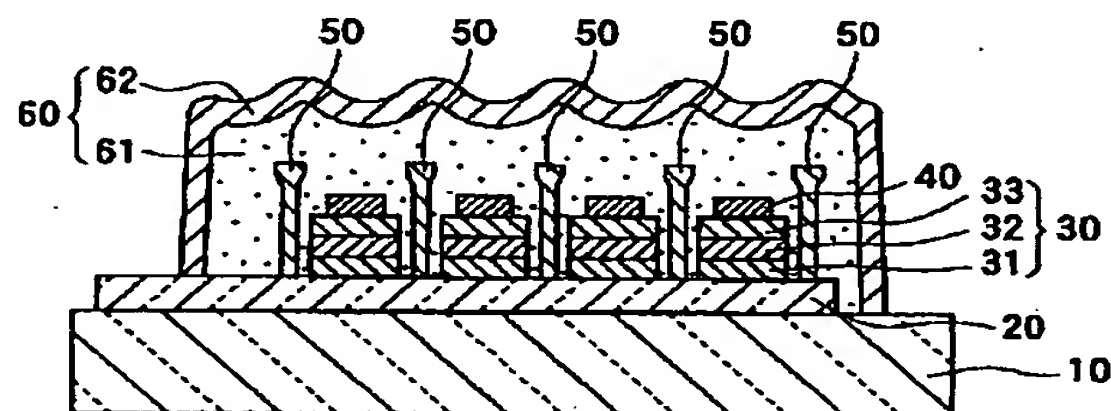
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機EL素子

(57)【要約】

【課題】 短時間で成膜可能であり且つピンホールの発生を防止した保護膜を有する有機EL素子を提供する。

【解決手段】 陽極20、発光層32を含む有機層30、陰極40の順に積層された積層体、及び、陰極40の間を分断する隔壁50よりなる層状物20~50が、基板10上に形成されており、基板10上には、層状物20~50の上を被覆して保護する保護膜60が形成されており、この保護膜60は、層状物の最大厚さである隔壁50の厚さ以上の厚さを有するとともに、基板10側から順に第1の膜61、第2の膜62が積層された2層構造となっており、第2の膜62は、第1の膜61よりも薄く且つ防湿機能が高いものとしている。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対の電極（20、40）とこれら一対の電極間に挟まれた有機発光材料よりなる発光層（32）とを含む層状物（20～50）が、基板（10）上に形成されてなる有機EL素子において、

前記基板上には、前記層状物の上を被覆して保護する保護膜（60）が形成されており、

この保護膜は、前記層状物の最大厚さ以上の厚さを有するとともに、前記基板側から順に第1の膜（61）、第2の膜（62）が積層された2層以上の積層構造となっているものであり、

前記第2の膜は、前記第1の膜よりも薄く且つ防湿機能が高いものであることを特徴とする有機EL素子。

【請求項2】 前記保護膜（60）において、前記第1の膜（61）が前記層状物（20～50）の最大厚さ以上の厚さを有することを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子。

【請求項3】 前記層状物（20～50）は、前記基板（10）上の領域を複数個の画素に区画するために前記基板上に形成された隔壁（50）を含むものであり、

この隔壁の厚さが、前記層状物の最大厚さとなっていることを特徴とする請求項1または2に記載の有機EL素子。

【請求項4】 前記保護膜（60）の最表面層は、機械的な保護層として機能するようになっていることを特徴とする請求項1ないし3のいずれか1つに記載の有機EL素子。

【請求項5】 前記保護膜（60）における最も前記基板（10）側の層の熱膨張係数が、前記基板と同一のオーダーであることを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1つに記載の有機EL素子。

【請求項6】 前記保護膜（60）の全応力が、200 N/m以下であることを特徴とする請求項1ないし5のいずれか1つに記載の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、一対の電極とこれら一対の電極間に挟まれた有機発光材料よりなる発光層とを含む層状物、及び、層状物の上を被覆して保護する保護膜が、基板上に形成されてなる有機EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術】一般に、有機EL素子は、一対の電極とこれら一対の電極間に挟まれた有機発光材料よりなる発光層とを含む層状物が、基板上に形成されてなるものである。このような有機EL素子は、自己発光のため、視認性に優れ、かつ数V～数十Vの低電圧駆動が可能のため駆動回路を含めた軽量化が可能である。そこで、有機EL素子は、薄膜型ディスプレイ、照明器具、バックライト等としての活用が期待できる。

【0003】このような有機EL素子においては、作動時の環境中の水分等によってダークスポットと呼ばれる非発光部が形成されるという問題があった。この問題に対して、従来より、ステンレス等よりなる缶を用いて素子の外周を接着剤（例えば紫外線硬化型の接着剤）で封止する方法が採用されている。

【0004】この缶封止構造の場合、封止された中空部分には乾燥窒素を封入し、且つ、吸湿剤（酸化バリウム等）を保持することで、外部から侵入してくる水分を吸着するようにしている。しかしながら、この缶封止構造の場合、金属製の封止缶の厚さが2～3mm程度あるため素子全体が厚くなってしまふことや、封止に係る部材が多く、組付工程に手間がかかり、コストが高くなるという問題があった。

【0005】そこで、この缶封止構造の問題を解決する手法として、SiNからなるプラズマCVD法を用いた保護膜がある（第46回応用物理学関係連合講演会 講演予稿集、p. 1279（1999年3月））。この方法では、2μmの厚さのSiNからなる防湿性の保護膜によって、基板上にて層状物を被覆して保護することにより、水分の侵入を防ぎ、ダークスポットの発生・拡大を防止している。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、SiNからなるプラズマCVD法を用いた保護膜では、保護膜の形成時において、成膜速度向上のためにプラズマのパワーを増加させた場合や高温で成膜した場合、基板上の有機層が分解することによって非発光部が発生するという問題がある。

【0007】そこで、低パワーで成膜する必要があるが、低パワーで2μmの厚さのSiNからなる保護膜を形成する場合、数時間程度の成膜時間が必要であり、生産性を考慮した場合、時間がかかり結果としてコストが高くなるという問題がある。

【0008】さらに、短時間で保護膜を形成するためには、単純に防湿性の保護膜の厚さを薄くすればよいが、その場合、有機EL素子の基板上に存在する凹凸を覆いきることが難しい。そのため、被覆状態の悪い凹凸部では、保護膜にピンホールが存在し、そのピンホールが水分侵入の経路となり、ダークスポットの発生に至ることになってしまう。

【0009】本発明は上記問題に鑑み、短時間で成膜可能であり且つピンホールの発生を防止した保護膜を有する有機EL素子を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、請求項1に記載の発明では、一対の電極（20、40）とこれら一対の電極間に挟まれた有機発光材料よりなる発光層（32）とを含む層状物（20～50）が、基板（10）上に形成されてなる有機EL素子におい

て、基板上には、層状物の上を被覆して保護する保護膜(60)が形成されており、この保護膜は、層状物の最大厚さ以上の厚さを有するとともに、基板側から順に第1の膜(61)、第2の膜(62)が積層された2層以上の積層構造となっているものであり、第2の膜は、第1の膜よりも薄く且つ防湿機能が高いものであることを特徴としている。

【0011】それによれば、保護膜を、層状物の最大厚さ以上の厚さを有するものとするにより、基板上の層状物により形成された最大の凹凸部までも良好に被覆して平坦化することができ、保護膜のピンホール発生を防止できる。

【0012】そして、保護膜を少なくとも2層の積層構造とし、上層側の第2の膜を、下層側の第1の膜よりも薄く且つ防湿機能が高いものにすることにより、主として防湿の役目を担う第2の膜を比較的薄いものにできると共に、比較的厚い下層側の第1の膜として成膜速度の速い材質や成膜方法を採用することにより、成膜速度の短時間化を確保できる。

【0013】よって、本発明によれば、短時間で成膜可能であり且つピンホールの発生を防止した保護膜を有する有機EL素子を提供することができる。ここで、請求項2に記載の発明のように、保護膜(60)を、第1の膜(61)が層状物(20~50)の最大厚さ以上の厚さを有するものにすることができる。

【0014】また、請求項3に記載の発明では、層状物(20~50)は、基板(10)上の領域を複数個の画素に区画するために基板上に形成された隔壁(50)を含むものであり、この隔壁の厚さが、層状物の最大厚さとなっていることを特徴としている。請求項1または請求項2の発明は、このような有機EL素子においても上記した効果を発揮する。

【0015】また、請求項4に記載の発明では、保護膜(60)の最表面層は、機械的な保護層として機能するようになっていることを特徴としている。それによれば、後工程で機械や人間が触った場合に、保護膜に穴があくのを防止することができる。

【0016】また、請求項5に記載の発明では、保護膜(60)における最も基板(10)側の層の熱膨張係数が、基板と同一のオーダーであることを特徴としている。それによれば、素子が高温で作動する場合でも、基板や被覆している層状物とともに保護膜が同様に変形するため、ピンホールの発生を防止するには好ましい。

【0017】また、保護膜の全応力が小さい方が、保護膜にクラックが発生しにくいことに着目して実験検討したところ、保護膜の全応力が200N/mを超えると、その応力によってクラックが発生した。そこで、保護膜におけるクラックの発生を防止するためには、請求項6に記載の発明のように、保護膜(60)の全応力が200N/m以下であることが好ましい。

【0018】なお、上記各手段の括弧内の符号は、後述する実施形態に記載の具体的手段との対応関係を示す一例である。

【0019】

【発明の実施の形態】以下、本発明を図に示す実施形態について説明する。図1は、本実施形態に係る有機EL素子の概略断面図、図2は、図1における有機EL素子の上視平面図である。10は、可視光に対して透明性を有する基板であり、例えば、ガラス基板より構成されている。

【0020】基板10の一面上には、透明性を有する導電膜からなる陽極20がスパッタ法等により形成されている。陽極20は、例えばITO(インジウム-錫の酸化物)やインジウム-亜鉛の酸化物等より構成することができ、その膜厚は100nm~1μm程度であり、好ましくは150nm程度とすることができる。本例の陽極20は、厚さ150nmのITOとしている。

【0021】陽極20の上には、正孔輸送性の有機材料よりなる正孔輸送層31、有機発光材料(例えば蛍光色素を電子輸送性または正孔輸送性の有機材料にドープしたもの)よりなる発光層32、電子輸送性の有機材料よりなる電子輸送層33が、順次積層形成されている。本実施形態では、これら積層された各層31~33により、発光部としての有機層30が構成されている。

【0022】本例では、正孔輸送層31は、α-NPD(α-ナフチル・フェニル・ベンゼン)とし、発光層32は、電子輸送性のAlq(トリス(8-キノリール)アルミニウム)に蛍光色素としてのクマリンを1%添加した電子輸送性の発光層とし、電子輸送層33はAlqとしている。各層31~33は真空蒸着法により形成できる。そして、有機層30の全膜厚は0.1μm程度としている。

【0023】なお、有機層30は、正孔輸送層31、発光層32、電子輸送層33の積層構成に限定されるものではなく、正孔注入層や電子注入層が存在していても良い。また、発光層は電子輸送性でも正孔輸送性でも良い。さらには、発光部としての有機層30は公知の構成も採用可能である。

【0024】また、電子輸送層33の上には、陰極40が形成されている。陰極40としては、AlやMg-Ag等の金属材料等を採用することができる。本例では、陰極40は、電子注入性を高めるために電子輸送層33側にLiF(フッ化リチウム)、このLiFの上にアルミニウムが成膜された2層構造としている。

【0025】このように、本実施形態では、一对の電極20、40と、これら一对の電極20、40間に挟まれた正孔輸送層31、発光層32、電子輸送層33とが、基板10上に形成されている。

【0026】ここで、有機EL素子においては、両電極20、40の重なり合う部分が、表示部としての画素を

構成する。本例では、図1及び図2に示す様に、陽極20及び陰極40は共に複数本のものがストライプ状に平面的に配列しており、陽極20及び陰極40は互いに直交して対向している。そのため、図示しないが、複数個の画素が格子状に配列した形となっている。

【0027】そして、隣り合う個々の陰極40の間には、樹脂よりなる隔壁50が形成されており、個々の陰極40を分断している。つまり、隔壁50は、基板10上の領域を複数個の画素に区画するために形成されたものと言える。ここで、隔壁50は、陰極40を成膜する際のマスクの役目を担うものであり、隔壁50により、隣り合う画素の陰極40が分断され、電気的にも分離される。

【0028】このように、本実施形態では、基板10上には、一対の電極20、40、有機層30、及び隔壁50よりなる層状物が形成されている。そして、隔壁50の厚さ（高さ）は、上記した陰極40の分断機能を発揮するために陰極40の高さ以上となっている。そのため、基板10上における層状物20～50の最大厚さは、隔壁50の厚さであり、本例では約 $2\mu\text{m}$ である。

【0029】また、基板10上には、層状物20～50の上を被覆して保護するための保護膜60が形成されている。この保護膜60は、層状物20～50の最大厚さ以上の厚さ（本例では隔壁50の厚さ約 $2\mu\text{m}$ ）を有するとともに、基板10側から順に第1の膜61、第2の膜62が積層された2層構造となっている。そして、第2の膜62は、第1の膜61よりも薄く且つ防湿機能が高いものである。

【0030】ここで、比較的厚い第1の膜61は、主として基板10上の凹凸を平坦化する役目を担うもので、例えば、気相重合により形成されたポリレン、有機材料からなるフラン等のプラズマ重合膜、 SiO_2 等のスパッタ膜など、 μm オーダーの膜を短時間で形成できる方法及び材質を採用することができる。

【0031】一方、比較的薄い第2の膜62は、主として非被覆物の防水の役目を担うもので、例えば、 Al_2O_3 や TiO_2 等の防湿性の膜よりなるものとでき、その形成方法としては、ALE（アトミックレイヤーエピタキシー）法、スパッタ法、CVD法（化学蒸着法）等を採用することができる。

【0032】本例の保護膜60では、第1の膜61を、気相重合によって隔壁50の厚さ（層状物の最大厚さと同程度の厚さ（約 $2\mu\text{m}$ ）に形成されたポリレンよりなるものとし、第2の膜62を、ALE法によって約 $0.1\mu\text{m}$ の厚さに形成された Al_2O_3 としている。

【0033】かかる有機EL素子の製造方法の一例について、概略的に述べておく。まず、ガラス基板10上に、スパッタ法等を用いてパターンニングされたITOよりなる陽極20を形成する。次に、隔壁50を形成する。まず、基板10上の全面に隔壁50となるネガ型の

光感光性樹脂（レジスト）をスピンコートし、隔壁50となる部分以外に光照射する。

【0034】その後、現像材料を用いて、隔壁50以外の部分の光感光性樹脂を溶解し除去する。このとき、上述したような、隔壁50における陰極40を形成する際のマスクとしての機能を十分に発揮させるために、隔壁50の先端側に向かって逆テーパ形状になるようにオーバーエッチングする。次に、正孔輸送層31、発光層32、電子輸送層33を真空蒸着法により形成し、さらに、陰極40を成膜する。

【0035】次に、上述したように、気相重合によって約 $2\mu\text{m}$ の厚さのポリレンよりなる第1の膜61を形成し、ALE法によって約 $0.1\mu\text{m}$ の厚さの Al_2O_3 よりなる第2の膜62を形成する。こうして、保護膜60が完成し、図1に示す有機EL素子が完成する。

【0036】かかる有機EL素子においては、対向する陽極20と陰極40との間に直流電流（駆動電流）を印加することにより、陽極20から正孔輸送層31を介して発光層32へ正孔を注入する一方、陰極40から電子輸送層33を介して発光層32へ電子が注入される。

【0037】すると、発光層32の内部にて電子と正孔とが再結合し、励起子を生成する。発光層32内の蛍光色素は、この励起子のエネルギーを授受し、固体状態の蛍光ピーク波長に応じた発光色（本例のAlqにクマリンを1%ドープした発光層では緑色）にて発光し、基板10側からの発光として視認される。本例では、10Vの駆動電流で $5000\text{cd}/\text{m}^2$ の高輝度な緑色発光が得られた。

【0038】ところで、本実施形態によれば、保護膜60を、層状物20～50の最大厚さ以上の厚さを有するものとするにより、基板10上の層状物20～50により形成された最大の凹凸部までも良好に被覆して平坦化することができ、保護膜60のピンホール発生を防止できる。

【0039】そして、保護膜60における上層側の第2の膜62を、下層側の第1の膜61よりも薄く且つ防湿機能が高いものにするにより、主として防湿の役目を担う第2の膜62を比較的薄いものにできると共に、比較的厚い下層側の第1の膜61として成膜速度の速い材質や成膜方法を採用することにより、成膜速度の短時間化を確保できる。

【0040】ちなみに、上記した本例の保護膜60（厚さ約 $2.1\mu\text{m}$ ）の形成では、約1時間程度の成膜時間であり、従来のSiNからなるプラズマCVD法を用いた保護膜（厚さ約 $2\mu\text{m}$ ）を適切なパワーにて形成したときの成膜時間（約3時間）に比べて、成膜時間を大幅に短縮できた。

【0041】よって、本実施形態によれば、短時間で成膜可能であり且つピンホールの発生を防止した保護膜を有する有機EL素子を提供することができる。そして、

水分の侵入が極力抑制され、ダークスポットを防止した有機EL素子を実現することができる。

【0042】なお、本例では、保護膜60において、第1の膜（パリレン）61の厚さを、層状物20～50の最大厚さ（隔壁の厚さ、約2 μ m）と同程度としたが、同等以上あるいは同等以下でもよい。しかし、第1の膜61は、主として平坦化の役目を担うため、第1の膜61の厚さは、層状物20～50の最大厚さ以上とする方が、平坦性向上のためには好ましいと考える。

【0043】また、本実施形態においては、保護膜60における最も基板10側の層（本例ではパリレンよりなる第1の膜61）の熱膨張係数が、基板（本例ではガラス）10と同一のオーダーであることが好ましい。このようにすれば、有機EL素子が高温で作動する場合でも、基板10や被覆している層状物20～50とともに保護膜60が同様に変形するため、ピンホールの発生を防止しやすい。

【0044】また、本実施形態においては、保護膜60の全応力が200N/m以下であることが好ましい。これは、本発明者等の検討によれば、保護膜の全応力が200N/mを超えると、その応力によってクラックが発生した実験事実があり、このことから言えることである。

【0045】なお、保護膜は2層以外に、3層以上でもよい。例えば、第1の膜を2層以上とし、その上に第2の膜を積層してもよい。さらに、上記実施形態において、第2の膜62の上に、機械的な保護を行う機械的保護層を形成して3層以上の保護膜60の構成としてもよい。この場合、保護膜60の最表面層は、機械的な保護層として機能し、後工程で機械や人間が触った場合に、保護膜60に穴があくのを防止することができる。

【0046】このような最表面層が機械的な保護層である保護膜60の具体例を、本実施形態の変形例として次に示しておく。図3は、第1の変形例であり、図1に示した保護膜60において、第2の膜62の上に更に、樹脂からなる膜厚が0.1mmから1mm程度の第3の膜63を形成し、この最表面層である第3の膜63が機械的な保護層として機能するものである。その材質としては、シリコン系のシール材や、粘着剤付のプラスチックフィルム等でも良い。

【0047】図4は第2の変形例であり、図1に示した保護膜60において、第2の膜62の上に更に、積層構造を有する機械的な保護層を形成するものである。図示例では、機械的な保護層64は下層64a、上層64b

の2層である。

【0048】具体的には、この保護層64は、上層64bとして厚さ1mm程度のプラスチックや金属の板を用い、下層64aとして接着剤を用いる。この接着剤としては、100℃程度で硬化するもの、紫外線（UV）で硬化するもの、及び2液硬化性のもの等が使用可能である。

【0049】なお、本実施形態において、図1に示す様な保護膜60を形成する際、図3に示す第3の膜63を形成する際、または、図4に示す保護層64を形成する際に、有機層30のガラス転移温度 T_g に30℃程度を加えた温度以下（例えば80℃～150℃）の温度を加えることが好ましい。

【0050】この温度処理によって、有機層中の分子配置を整え、輝度の長期安定性を維持しやすくなる（長寿命効果）。通常、 T_g を超えると有機膜が劣化するとも言われているが、本発明者等の検討では、保護膜60を形成するような数時間以内のプロセスにおいては、（ $T_g + 30$ ）℃程度以下の温度であれば、劣化しないことを見出している。

【0051】さらに、上記長寿命効果を発現させる上で、より高温にするほど、有機層中の分子配置を短時間に整えることができるという、本発明者等の実験確認も行っており、その点からも、この高温処理の必要性は大きい。

【0052】なお、上記実施形態では、隔壁50の厚さが基板10上の最大厚さとなっているが、隔壁の無い構成であっても良いことは勿論である。その場合、基板10上の層状物の中で最大の段差を持つ凹凸部（例えば図1における陰極間の段差部）が、上記最大厚さとなる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施形態に係る有機EL素子の概略断面図である。

【図2】図1における有機EL素子の上面図である。

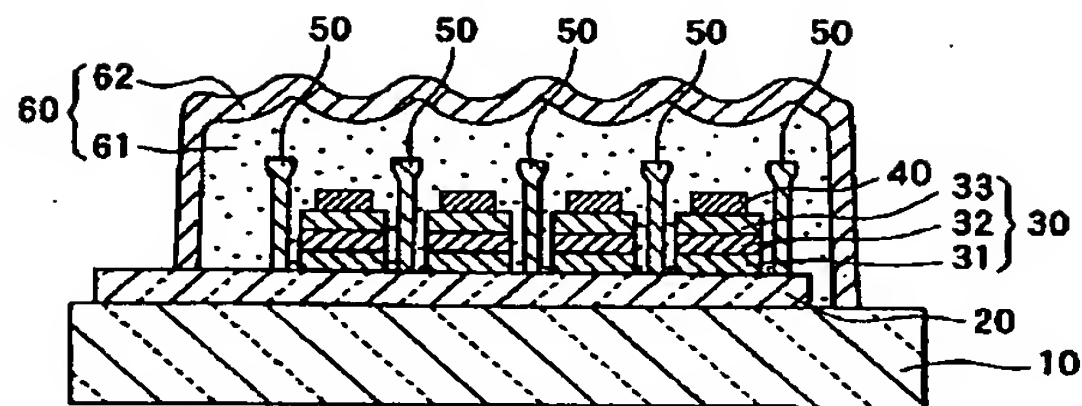
【図3】上記実施形態の第1の変形例を示す概略断面図である。

【図4】上記実施形態の第2の変形例を示す概略断面図である。

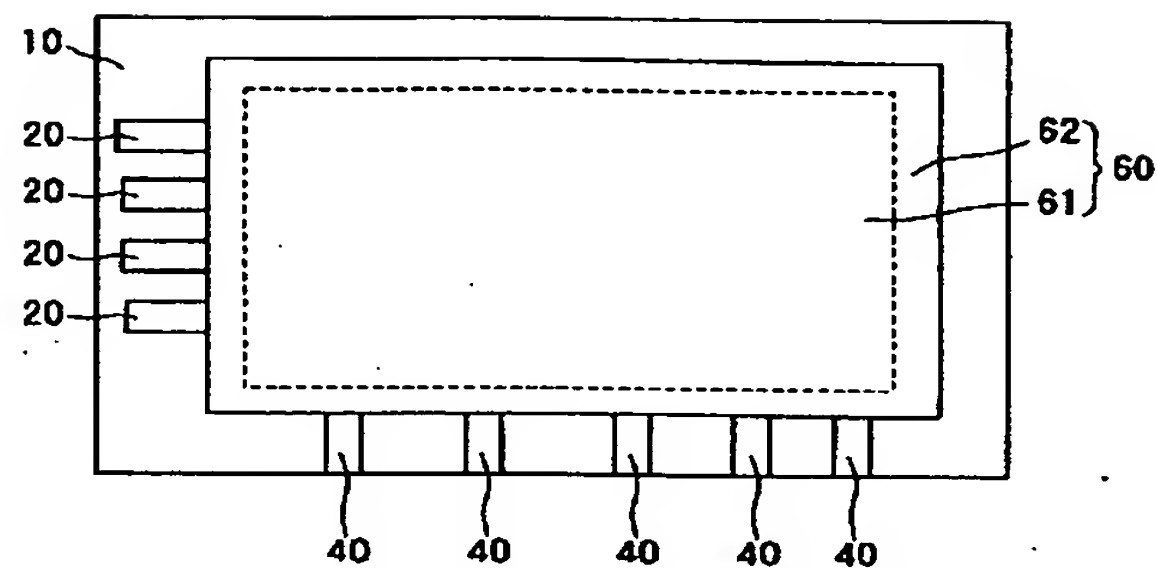
【符号の説明】

20…陽極、30…有機層、31…正孔輸送層、32…発光層、33…電子輸送層、40…陰極、50…隔壁、60…保護膜、61…第1の膜、62…第2の膜。

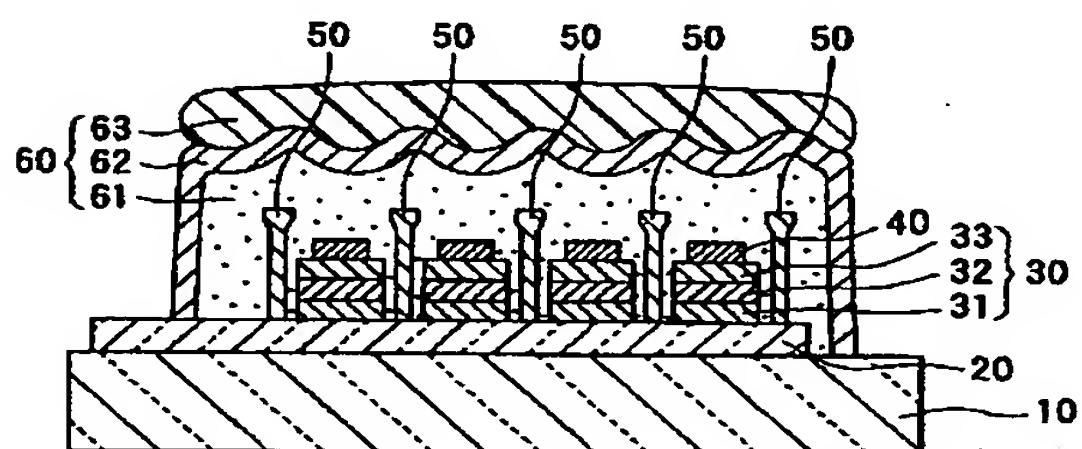
【図1】



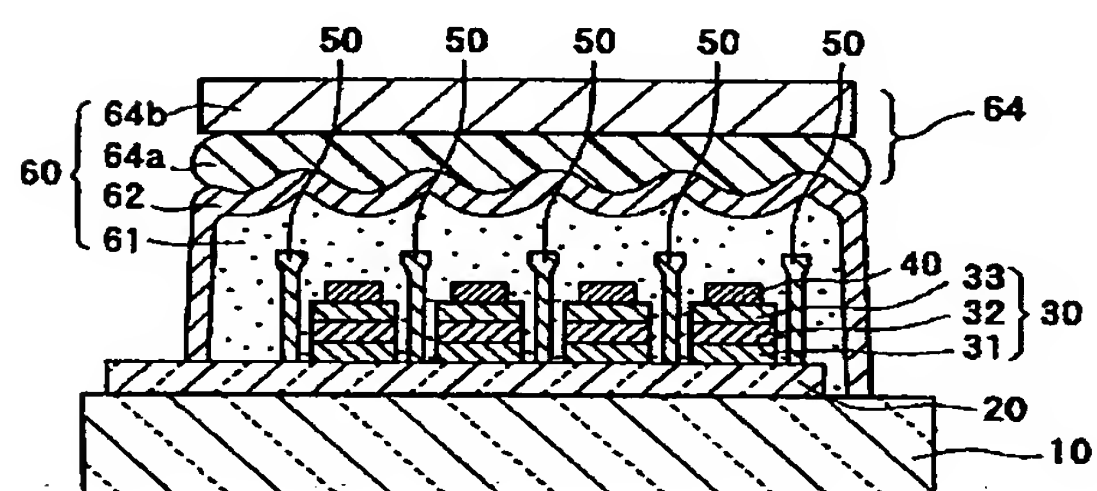
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 寺 亮之介
愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会
社デンソー内

(72)発明者 竹中 博
愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会
社デンソー内

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB13 AB18 BA06 BB01
CA01 CB01 DA00 DB03 EA04
EB00 FA01 FA02 FA03